

32301W090

PATENT

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant(s): Gunther Michael, et al.

U.S. Serial No.: 09/740,039

Group Art Unit: 1712

Filed: : December 20, 2000

Examiner: To Be Assigned

For : HYDROPHOBIC SILICA

CLAIM FOR PRIORITY

Assistant Commissioner for Patents  
Washington, D.C. 20231


Sir:

Under the provisions of 35 U.S.C. § 119, Applicants hereby claim the benefit of the filing date of Patent Appln. No. 199 61 933.6, filed in Germany on December 22, 1999.

In support of this priority claim, Applicant submits herewith a certified copy of the priority application.

Respectfully submitted,

SMITH, GAMBRELL & RUSSELL, LLP

By:   
Robert G. Weilacher, Reg. No. 20,531  
1850 M Street, N.W., Suite 800  
Washington, D.C. 20036  
Telephone: (202) 659-2811  
Fax: (202) 263-4329

April 13, 2001

# BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND



## Prioritätsbescheinigung über die Einreichung einer Patentanmeldung

**Aktenzeichen:** 199 61 933.6

**Anmeldetag:** 22. Dezember 1999

**Anmelder/Inhaber:** Degussa-Hüls AG, Frankfurt am Main/DE

**Bezeichnung:** Hydrophobe Kieselsäure

**IPC:** C 01 B 33/18

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 2. Oktober 2000  
**Deutsches Patent- und Markenamt**  
**Der Präsident**  
Im Auftrag

**Jerofsky**

### Hydrophobe Kieselsäure

Die Erfindung betrifft eine hydrophobe, pyrogen hergestellte Kieselsäure, ein Verfahren zu ihrer Herstellung und ihrer Verwendung.

Es ist bekannt, hydrophile, pyrogen hergestellte Kieselsäure zu verdichten (EP 0 280 854 B1). Nachteiligerweise nimmt mit zunehmender Stampfdichte, beziehungsweise Schüttgewicht die Verdickungswirkung linear ab. Zusätzlich nimmt die Dispergierbarkeit mit zunehmender Dichte ab. Dies zeigt sich durch eine unerwünschte Stippenbildung. Eine hydrophile, pyrogen hergestellte Kieselsäure kann daher nach der Verdichtung nur für eine begrenzte Anzahl von Einsatzzwecken verwendet werden.

Gegenstand der Erfindung ist eine hydrophobe, pyrogen hergestellte Kieselsäure, welche dadurch gekennzeichnet ist, daß sie eine Stampfdichte von 55 bis 200 g/l aufweist.

Bevorzugt kann die Stampfdichte 60 bis 200 g/l betragen.

Ein weiterer Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Herstellung der hydrophoben, pyrogen hergestellten Kieselsäure mit einem Schüttgewicht von 55 bis 200 g/l, welches dadurch gekennzeichnet ist, daß man pyrogen hergestellte Kieselsäure auf bekanntem Wege hydrophobiert und anschließend verdichtet.

Bevorzugt kann die Hydrophobierung mittels halogenfreier Silane erfolgen. Der Chlorid-Gehalt der Kieselsäure kann gleich oder unter 100 ppm, bevorzugt 10 bis 100 ppm betragen.

Die Verdichtung kann mittels eines Walzenverdichters erfolgen. Bevorzugt kann die Verdichtung mittels eines Preßbandfilters gemäß EP 0 280 851 B1 erfolgen.

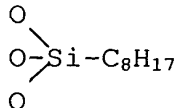
Als hydrophobe, pyrogen hergestellte Kieselsäure können zum Beispiel die Kieselsäuren:

Aerosil R 812 oder Aerosil R 812S, mit der Gruppierung  
-O-Si (CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>

Aerosil R 202, Aerosil MS 202, Aerosil MS 202, Aerosil R 106

oder Aerosil R 104, mit der Gruppierung 
$$\left[ \begin{array}{c} -\text{CH}_3 \\ | \\ -\text{Si}-\text{O} \\ | \\ \text{CH}_3 \end{array} \right]_n$$

Aerosil R 805 mit der Gruppierung



verwendet werden.

Die erfindungsgemäße hydrophobe, pyrogene Kieselsäure mit einem Stampfgewicht von 55 bis 200 g/l weist die folgenden Vorteile auf:

Auf Grund der höheren Stampfdichte sind die Transportkosten deutlich niedriger.

Nach der Dispergierung liegt die erfindungsgemäße Kieselsäure in kleineren Aggregaten vor. Das heißt: Die Dispersionen sind feinteiliger, weil die erfindungsgemäße Kieselsäure besser dispergierbar ist.

Die mit der erfindungsgemäßen Kieselsäure hergestellten Dispersionen weisen einen kleineren Grindometerwert auf.

Sowohl die Transparenz, gemessen an UV-Transmission, als auch die visuelle Durchsichtigkeit der Dispersionen werden durch die Verwendung der erfindungsgemäßen Kieselsäure deutlich verbessert.

Die Dispersionen, die die erfindungsgemäße Kieselsäuren enthalten, zeigen eine deutlich erhöhte Stabilität, weil die Sedimentationsneigung deutlich geringer ist.

Ein weiterer Vorteil der erfindungsgemäßen Kieselsäure ist die reduzierte Staubbildung bei der Einarbeitung und die deutlich herabgesetzte Einarbeitungs- beziehungsweise Benetzungszeit in zum Beispiel flüssige Systemen.

Die Hydrophobie ist bei der erfindungsgemäßen Kieselsäure gegenüber der hydrophoben, pyrogenen Kieselsäure mit niedrigerem

Schüttgewicht unverändert. Auch die Verdickungswirkung ist unverändert.

### Beispiel 1

Es werden verschiedene hydrophobe, pyrogen hergestellte Kieselsäuren untersucht, wobei verschiedene Verdichtungszustände gegenübergestellt werden.

Es bedeuten:

lose = pulverförmige, unveränderte Kieselsäure

CF = mit Carterfilter verdichtete Kieselsäure

VV 60 = auf eine Stampfdichte von ca. 60 g/l verdichtete Kieselsäure

VV 90 = auf eine Stampfdichte von ca. 90 g/l verdichtete Kieselsäure

Untersucht werden die Aerosil-Typen R 202, US 202, US 204, R 812, R812S und R 805. Die Ergebnisse sind in der Tabelle 1 aufgeführt.

Die Methanolbenetzbarkeit zeigt Figur 3.

Der Verdichtungsgrad hat praktisch keinen nennenswerten Einfluß auf die Hydrophobie, beurteilt nach der Methanolbenetzbarkeit nach Corning Glass. Auch die Viskosität zeigt keine deutliche systematische Abhängigkeit von der Stampfdichte. Insbesondere bei R 812 wird die Dispergierbarkeit mit steigender Dichte besser. R 812 S, das mehr SiOH-Gruppen enthält als R 812, zeigt obiges Phänomen weniger deutlich.

US 202 und US 204 sind rheologisch gut miteinander vergleichbar und AEROSIL R 202 unterlegen.

Die verdichteten Varianten zeigen überraschender Weise insbesondere bei R 812, R 202 und US 202/4 eine um bis zur Hälfte verkürzte Einarbeitungszeit. Ferner zeigen die verdichteten Kieselsäuren eine geringere Staubentwicklung.

PA	Prüfmethode	444701 AE R202 CF	444702 AE R202 CF	444703 AE R 202 W60	444704 AE R202 W90	444705 AE R805 lose	444706 AE R805 CF	444707 AE R805 W60	444708 AE R805 W90	444709 AE R812 lose	444710 AE R812 CF	444711 AE R 812 W60	
0330	Viskosität Bpoxid v. HÄ	459	456	382	430	190	184	185	178				
0335	Viskosität Bpoxid n. HÄ	54,4	54,7	49,4	52,8	42	41,7	39	43				
0340	Verdickungswirkung									11,7	13,3	11,5	
0410	Gründmetenwert									127	102	92	
0420	Methanolbenetzbarkeit												
0701	Stampflichte	45	50	51	75	44	62	55	68	45	44	50	
0920	Agglomeratfestigkeit		11	20	18		15	15	20				
0930	Siebrückstand Handr.	0	24	4	27	0	36	7	19	0	0		
0955	Effektivität	258	274	203	266	235	260	236	258	166	185	169	
0965	Effektivität (UT)	280	290	226	295	271	284	270	288	197	213	209	
0975	Sediment (Effektivität)	15	15	15	8	10	15	10	5	13	15	8	
PA	Prüfmethode	444712 AE R 812 W90	444713 AE R 812S lose	444714 AE R 812S CF	444715 AE R 812S W60	444716 AE R 812S W90	444717 US 202 lose	444718 US 202 CF	444719 US 202 W60	444720 US 204 lose	444721 US 204 CF	444722 US 204 W60	444723 US 204 W90
0330	Viskosität Bpoxid v. HÄ						350,4	377,6	380,8	379,2	350,4	358,4	368
0335	Viskosität Bpoxid n. HÄ						50,7	45,9	45,3	49,9	47	52,6	50,7
0340	Verdickungswirkung	11,1	17,3	17,3	18,2	17							
0410	Gründmetenwert	77	93	110	110	100							
0420	Methanolbenetzbarkeit												
0701	Stampflichte	73	49	50	58	75	39	50	67	44	45	57	71
0920	Agglomeratfestigkeit	22				28		10	15			16	23
0930	Siebrückstand Handr.	12	0	0	0	4	0	27	36	0	0	3	20
0955	Effektivität	159	168	169	187	209	320	304	320	186	193	192	201
0965	Effektivität (UT)	225	201	200	216	235	336	327	346	223	225	225	230
0975	Sediment (Effektivität)	5	8	8	3	0	15	10	3	10	10	10	10

Rhologiische Prüfung:

Polymer: Araldit M

Thixmittel: R 202 und R 812

Zusatz: -

5 Probe A R 812 10 kg 2-10123

Herstellungsdatum der Probe: 24.02.1994

Spindel:5

Lag. Zeit in Tagen	5 Upm [mPa*s]	50 Upm [mPa*s]	T.-I.
0	16600 80-85 $\mu$	4460	3,72

Probe A R 812 15 kg 1,0/8 min

Herstellungsdatum der Probe: 24.02.1994

Spindel:5

Lag. Zeit in Tagen	5 Upm [mPa*s]	50 Upm [mPa*s]	T.-I.
0	15100 50-60 $\mu$	4060	3,72

10

Probe A R 812 20 kg 0,6/14 min

Herstellungsdatum der Probe: 24.02.1994

Spindel:5

Lag. Zeit in Tagen	5 Upm [mPa*s]	50 Upm [mPa*s]	T.-I.
0	15100 50-60 $\mu$	4020	3,73

Die Verdichtung kann eine Art Vordispergierung darstellen.

- 15 Entsprechend erhöhen sich mit der Stampfdichte die Effektivitätswerte, das heißt die effektiv vorliegenden Teilchen in der Ethanoldispersion werden kleiner und die verdichteten Proben setzen sich deutlich weniger ab.

Entsprechend ist in Araldit der Grindometerwert der verdichteten Proben günstiger. Da die größeren Teilchen aber maßgeblich die Verdickungswirkung beeinflussen, geht diese mit der Verdichtung geringfügig zurück.

- 5 Der Graphik mit den Effektivitätswerten kann man entnehmen, daß die hoch verdichtete AEROSIL R 812-Probe zwar noch mit dem Ultra-Turrax (0965), aber nicht mehr mit dem Dissolver (0955) aufgeschlossen werden kann. Aufgrund der geringeren Oberfläche von AEROSIL R 202 (und der damit prinzipiell  
10 besseren Dispergierbarkeit) tritt dieses Phänomen bei AEROSIL R 202 kaum auf.

- 15 Mit steigender Verdichtung werden die effektiv vorliegenden Teilchen in einer Ethanoldispersion also kleiner und die Streuung im 90-Grad-Winkel aufgrund der Rayleigh-Streuung größer. Die Totalstreuung (über alle Winkel) wird aber kleiner, die Proben werden für das Auge deutlich transparenter, was auch die UV-Transmissionsspektren belegen.

- 20 Die Verdichtung hat keinen Einfluß auf die Hydrophobie, die mit der des Standardmusters jeweils weitgehend übereinstimmt.

### Beispiel 3

Untersuchung des Einflusses einer höheren Verdichtung auf anwendungstechnische Eigenschaften



**Patentansprüche**

1. Hydrophobe, pyrogen hergestellte Kieselsäure, dadurch gekennzeichnet, daß sie eine Stampfdichte von 55 bis 200 g/l aufweist.
- 5 2. Verfahren zur Herstellung der hydrophoben, pyrogen hergestellten Kieselsäure gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man pyrogen hergestellte Kieselsäure auf bekanntem Wege hydrophobiert und anschließend verdichtet.
- 10 3. Verwendung der hydrophobe, pyrogen hergestellte Kieselsäure gemäß Anspruch 1 zur Herstellung von Dispersionen.

## Zusammenfassung

**Hydrophobe Kieselsäure**

Hydrophobe, pyrogen hergestellte Kieselsäure mit einer  
Stampfdichte von 60 bis 200 g/l wird hergestellt, indem man  
5 pyrogen hergestellte Kieselsäure hydrophobiert und an-  
schließend verdichtet. Sie kann zur Herstellung von Disper-  
sionen verwendet werden.



Creation date: 10-14-2003  
Indexing Officer: STANOH - SIMON TANOH  
Team: OIPEBackFileIndexing  
Dossier: 09740039

Legal Date: 05-29-2001

No.	Doccode	Number of pages
1	CTMS	1

Total number of pages: 1

Remarks:

Order of re-scan issued on .....

5/29/01



A DOCPHOENIX

## APPL PARTS

IMIS
Internal Misc. Paper
LET.
Misc. Incoming Letter

371P  
PCT Papers in a 371 Application

A...  
Amendment Including Elections

ABST  
Abstract

ADS  
Application Data Sheet

AF/D  
Affidavit or Exhibit Received

APPENDIX  
Appendix

ARTIFACT  
Artifact

BIB  
Bib Data Sheet

CLM  
Claim

COMPUTER  
Computer Program Listing

CRFL  
All CRF Papers for Backfile

DIST  
Terminal Disclaimer Filed

DRW  
Drawings

FOR  
Foreign Reference

FRPR  
Foreign Priority Papers

IDS  
IDS Including 1449

NPL  
Non-Patent Literature

OATH  
Oath or Declaration

PET.  
Petition

RETMAIL  
Mail Returned by USPS

SEQLIST  
Sequence Listing

SPEC  
Specification

SPEC NO  
Specification Not in English

TRNA  
Transmittal New Application

CTNF  
Count Non-Final

CTRS  
Count Restriction

EXIN  
Examiner Interview

M903  
DO/EO Acceptance

M905  
DO/EO Missing Requirement

NFDR  
Formal Drawing Required

NOA  
Notice of Allowance

PETDEC  
Petition Decision

## OUTGOING

CTMS
Misc. Office Action

1449  
Signed 1449

892  
892

ABN  
Abandonment

APDEC  
Board of Appeals Decision

APEA  
Examiner Answer

CTAV  
Count Advisory Action

CTEQ  
Count Ex parte Quayle

CTFR  
Count Final Rejection

## INCOMING

AP.B  
Appeal Brief

C.AD  
Change of Address

N/AP  
Notice of Appeal

PA..  
Change in Power of Attorney

REM  
Applicant Remarks in Amendment

XT/  
Extension of Time filed separate

## File Wrapper

FWCLM  
File Wrapper Claim

IIFW  
File Wrapper Issue Information

SRFW  
File Wrapper Search Info

## Internal

SRNT  
Examiner Search Notes

CLMPTO  
PTO Prepared Complete Claim Set

ECBOX  
Evidence Copy Box Identification

WCLM  
Claim Worksheet

WFEE  
Fee Worksheet

BACKFILE DOCUMENT INDEX SHEET



## UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

COMMISSIONER FOR PATENTS  
UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE  
WASHINGTON, D.C. 20231  
www.uspto.gov

APPLICATION NUMBER	FILING/RECEIPT DATE	FIRST NAMED APPLICANT	ATTORNEY DOCKET NUMBER
09/740,039	12/20/2000	Gunther Michael	32301W090

CONFIRMATION NO. 6197

## FORMALITIES LETTER



\*OC000000006123330\*

Smith, Gambrell & Russell, LLP  
Beveridge, DeGrandi, Weilacher & Young  
Intellectual Property Group  
1850 M Street, N.W. (Suite 800)  
Washington, DC 20036

Date Mailed: 05/29/2001

## NOTICE OF INCOMPLETE REPLY (NONPROVISIONAL)

*Filing Date Granted*

The U.S. Patent and Trademark Office has received your reply on to the Notice mailed and it has been entered into the nonprovisional application. The reply, however, doesnot include the following items required in the Notice.

The period of reply remains as set forth in the Notice. You may,however, obtain EXTENSIONS OF TIME under the provisions of 37 CFR 1.136 (a)accompanied by the appropriate fee (37 CFR 1.17(a)).

A complete reply must be timely filed to prevent ABANDONMENT of the above-identified application.

- A substitute specification in compliance with 37 CFR 1.52 because:
  - Papers contain improper margins. *Each sheet must have a left margin of at least 2.5 cm (1") and top, bottom and right margins of at least 2.0 cm (3/4")*

---

*A copy of this notice MUST be returned with the reply.*

Customer Service Center  
Initial Patent Examination Division (703) 308-1202

PART 3 - OFFICE COPY